

EUROPEAN PATENT OFFICE

Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 06088072
PUBLICATION DATE : 29-03-94

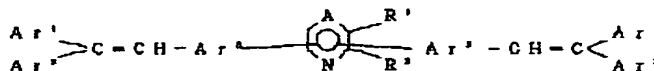
APPLICATION DATE : 07-09-92
APPLICATION NUMBER : 04238513

APPLICANT : IDEMITSU KOSAN CO LTD;

INVENTOR : HOSOKAWA CHISHIO;

INT.CL. : C09K 11/06 H05B 33/14

TITLE : ORGANIC ELECTROLUMINESCENT
ELEMENT



ABSTRACT : PURPOSE: To improve the thinness of films and adhesion to a cathode by sandwiching an electroluminescent element made up of a specific org. compd. between an anode and a cathode.

CONSTITUTION: An electroluminescent element made up of at least one layer of a heterocyclic styryl compd. of the formula [wherein A is C or N; R¹ and R² are each H or they combine with each other to form an (un)satd.arom. or heterocyclic ring condensed with a heterocyclic ring; Ar¹ and Ar² are each (substd.) 6-20C aryl or (substd.) 5-18C heterocyclic; substituting groups are each 1-6C alkyl, 1-6C alkoxy, 6-18C aryloxy, phenyl, nitro, cyano, amino, hydroxyl, or halogen provided they may combine with each other to form an (unsatd.) 5- or 6-membered ring; and Ar³ is (substd.) arylene or a single bond] is sandwiched between an anode having a sheet resistance of several hundreds of Ω/mm or lower, a film thickness of 10nm to 1μm, and a transmission of 10% or higher and a cathode having a sheet resistance of several hundreds of Ω/mm or lower and a film thickness of 10nm to 1μm.

COPYRIGHT: (C)1994,JPO&Japio

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平6-88072

(43) 公開日 平成6年(1994)3月29日

(51) Int.Cl. ⁵	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 9 K 11/06		Z 9159-4H		
H 0 5 B 33/14				

審査請求 未請求 請求項の数3(全 28 頁)

(21) 出願番号	特願平4-238513	(71) 出願人	000183646 出光興産株式会社 東京都千代田区丸の内3丁目1番1号
(22) 出願日	平成4年(1992)9月7日	(72) 発明者	東 久洋 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株式会社内
		(72) 発明者	東海林 弘 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株式会社内
		(72) 発明者	細川 地潮 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株式会社内
		(74) 代理人	弁理士 大谷 保

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

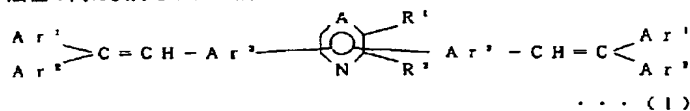
(57) 【要約】

【目的】 構成層の陰極への付着性を高めかつ薄膜性に優れた有機エレクトロルミネッセンス素子の開発。

【構成】 陽極および陰極の間に挟持された一層または*

* 複数層の有機化合物から構成される電界発光素子において、該有機化合物のうち少なくとも一層が一般式(1)

【化1】



(式中の記号は、明細書に記載の通りである。) で表さ

れる有機エレクトロルミネッセンス素子。

1

2

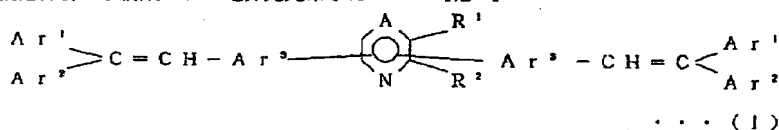
【特許請求の範囲】

【請求項1】 陽極および陰極の間に挟持された一層または複数層の有機化合物から構成される電界発光素子に*

*において、少なくとも一層を構成する有機化合物が一般式

(I)

【化1】



(式中、Aは炭素原子または窒素原子を示し、R¹ および R² は両者共に水素原子、両者が結合して複素環に縮合した飽和あるいは不飽和の芳香環、または飽和あるいは不飽和の複素環を示す。Ar¹ および Ar² は置換あるいは無置換の炭素数6~20のアリール基、置換あるいは無置換の炭素数5~18の複素環を示す。ここで、置換基とは炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~6のアルコキシ基、炭素数6~18のアリールオキシ基、フェニル基、ニトロ基、シアノ基、アミノ基、水酸基あるいはハロゲン原子を示す。また、これらの置換基は同一でも異なってもよく、さらに置換基同士が結合して飽和あるいは不飽和の五員環あるいは六員環を形成してもよい。Ar² は置換あるいは無置換の炭素数6~20のアリーレン基または単結合でもよい。)で表される複素環含有スチリル化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項2】 一般式(I)で表される化合物を発光層の構成成分とすることを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】 一般式(I)で表される化合物を電子注入輸送層の構成成分とすることを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は有機エレクトロルミネッセンス素子に関するものである。さらに詳しくは、本発明は薄膜性および陰極の付着性に優れた有機エレクトロルミネッセンス素子に関するものである。

【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】エレクトロルミネッセンス素子(以下、EL素子と略す。)自己発光のために視認性が高く、完全固体素子であるため耐衝撃性に優れているという特徴を有している。現在、実用に供されているEL素子は分散型EL素子である。これは、蛍光体を分散させた発光層に交流電圧を印加して発光させるものであるが、数十V、10kHz以上の交流電圧を印加する必要があり、その駆動回路は複雑で

あった。近年、発光層材料として有機化合物を用い、10V程度の直流電圧で駆動できる有機EL素子が開発された(C.W.Tong and S.A.VanSlyke, Appl. Phys. Lett., vol. 51, pp. 913~915(1987))。これらの有機EL素子は、透明電極/正孔注入層/発光層/背面電極の積層型であり、電極間の膜厚は1μm以下である必要がある。そのため、発光層に用いる化合物によってはピンホールを生じ易く、生産性が低いという問題がある。このピンホールを防ぐためには、素子を構成する薄膜性が非常に重要となってきた。また、発光性向上のため電子注入層を必要に応じて設ける素子構成が開示されている。例えば、アルミキレート錯体を用いた電子注入層(特開平3-163186号公報および同3-163187号公報参照)またはオキサジアゾール誘導体を用いた電子注入層(Appl. Phys. Lett., Vol. 55(1989), pp. 1489, 特開平3-35083号公報および同3-35084号公報参照)が挙げられる。このような電子注入層は、陰極との付着性およびそれ自身の薄膜性が重要であるが、薄膜性に問題があり、均一な発光は得られていない。また、芳香族複素環を含んだ化合物を用いた発光材料(特開平4-103571号公報参照)は、付着性には優れているが薄膜性に劣っている。

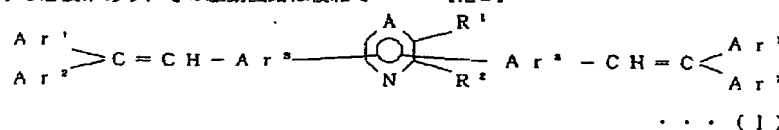
【0003】

【課題を解決するための手段】そこで本発明者らは、上記従来技術の欠点を解消し、陰極への付着性を高めかつ薄膜性に優れた有機エレクトロルミネッセンス素子を開発すべく鋭意研究を重ねた。その結果、芳香族複素環を含んだ化合物のビニル末端に2つの芳香環を導入し、分子スタッキングの規則性を乱すことにより、上記目的が十分に達成できることを見出した。本発明はかかる知見に基づいて完成したものである。

【0004】すなわち本発明は、陽極および陰極の間に挟持された一層または複数層の有機化合物から構成される電界発光素子において、少なくとも一層を構成する有機化合物が一般式(I)

【0005】

【化2】



【0006】(式中、Aは炭素原子または窒素原子を示し、 R^1 および R^2 は両者共に水素原子、両者が結合して複素環に縮合した飽和あるいは不飽和の芳香環、または飽和あるいは不飽和の複素環を示す。 $A r^1$ および $A r^2$ は置換あるいは無置換の炭素数6~20のアリール基、置換あるいは無置換の炭素数5~18の複素環を示す。ここで、置換基とは炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~6のアルコキシ基、炭素数6~18のアリールオキシ基、フェニル基、ニトロ基、シアノ基、アミノ基、水酸基あるいはハロゲン原子を示す。また、これらの置換基は同一でも異なってもよく、さらに置換基同士が結合して飽和あるいは不飽和の五員環あるいは六員環を形成してもよい。 $A r^2$ は置換あるいは無置換の炭素数6~20のアリーレン基または単結合でもよい。)で表される複素環含有スチリル化合物であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子を提供するものである。

【0007】本発明は、一般式(I)で表される複素環含有スチリル化合物を有機EL素子の構成成分とする。この構成成分は、有機EL素子の陽極と陰極の間に挟持された層の材料となり、一層または複数の層として有機EL素子を構成するものである。ここで、 $A r^1$ および $A r^2$ は置換あるいは無置換の炭素数6~20のアリール基(例えば、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、ターフェニル基、アントラセニル基、ピレニル基など)を示し、または炭素数5~18の複素環基(例えば、ピリジル基、キノリル基、カルバゾリル基、オキサジアゾリル基など)を示す。これらは、単一置換されていても複数置換されていてもよい。また、 $A r^2$ は置換あるいは無置換の炭素数6~20のアリーレン基(例えば、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、タ*

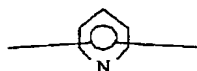
*-フェニレン基、アントラセンジイル基、ピレニジイル基など)を示し、または単結合でもよい。上記置換基としては、炭素数1~6のアルキル基(例えば、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、*i*-プロピル基、*n*-ブチル基、*i*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*t*-ブチル基、*i*-ペンチル基、*t*-ペンチル基、ネオペンチル基、*n*-ヘキシル基、*i*-ヘキシル基など)、炭素数1~6のアルコキシ基(例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、*i*-プロポキシ基、ブチルオキシ基、*i*-ブチルオキシ基、*sec*-ブチルオキシ基、*i*-ペンチルオキシ基、*t*-ペンチルオキシ基、*n*-ヘキシルオキシ基など)、炭素数6~18のアリールオキシ基(例えば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基など)、フェニル基、ニトロ基、シアノ基、アミノ基(アミン、ジメチルアミン、ジエチルアミン、ジフェニルアミンなど)、水酸基あるいはハロゲン原子を示し、単一置換されていても複数置換されていてもよい。また、一般式(I)で表される複素環含有スチリル化合物の複素環は、A、 R^1 および R^2 によって以下に示す種々の構造を挙げることができる。

(1) Aが炭素原子の場合

① $R^1 = R^2 = H$ の場合

【0008】

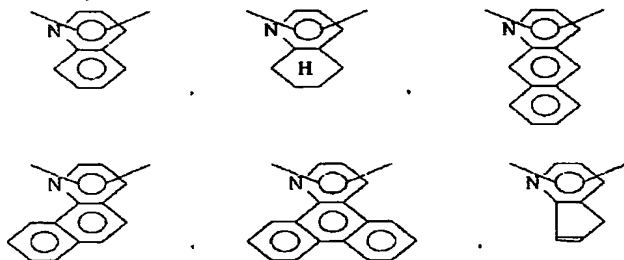
【化3】



【0009】② R^1 および R^2 が縮環した飽和または不飽和の芳香環の場合

【0010】

【化4】



【0011】③ R^1 および R^2 が縮環した飽和または不飽和の複素環の場合

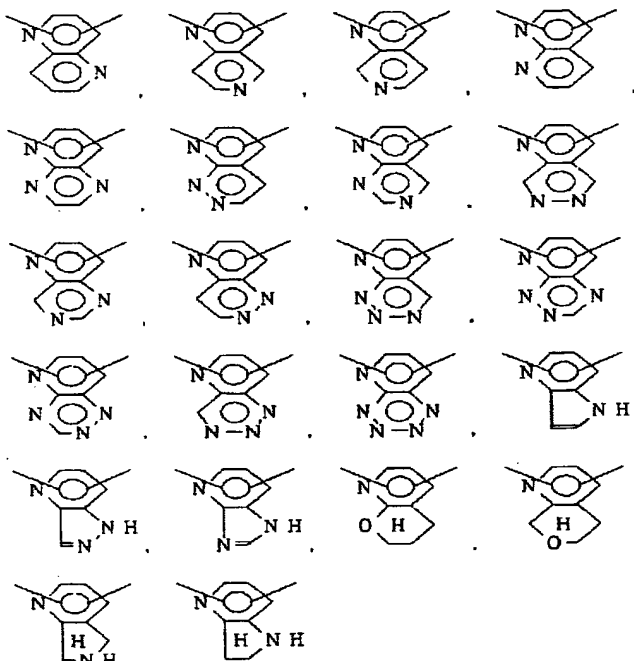
【0012】

【化5】

(4)

5

6

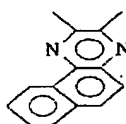
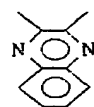
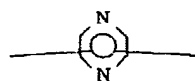


【0013】(2) Aが窒素原子の場合

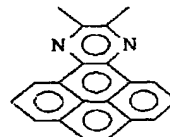
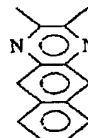
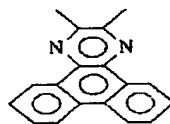
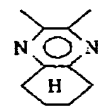
① $R^1 = R^2 = H$ の場合

【0014】

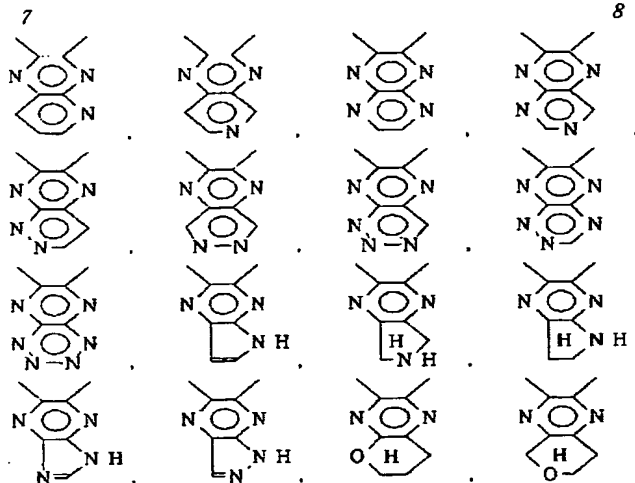
【化6】



* 30

【0017】③ R^1 および R^2 が縮環した飽和または不飽和の複素環の場合【0018】
【化8】

(5)



【0019】上記複素環を含んだ一般式(1)で表される有機化合物としては、種々のものが挙げられ、例えば

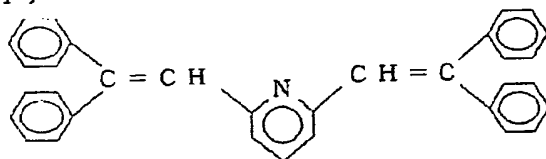
【0020】
【化9】

(6)

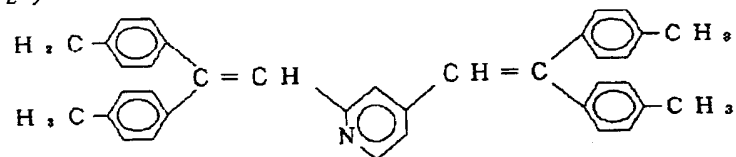
10

9

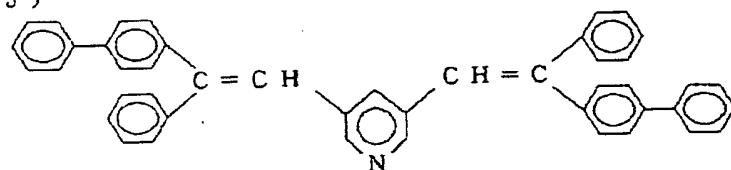
(1)



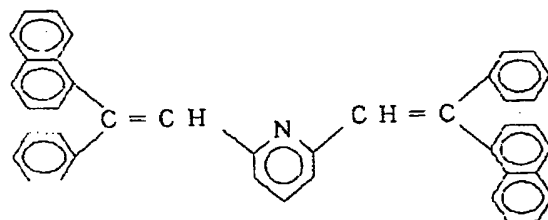
(2)



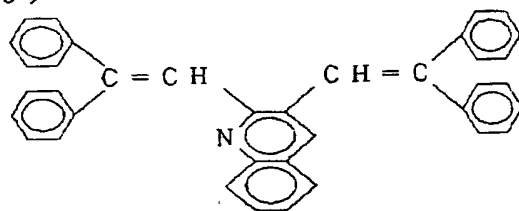
(3)



(4)



(5)



[0021]

[化10]

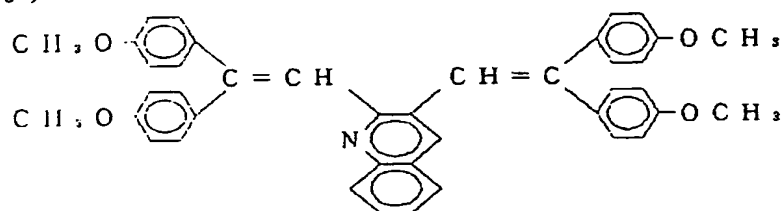
(7)

特開平6-88072

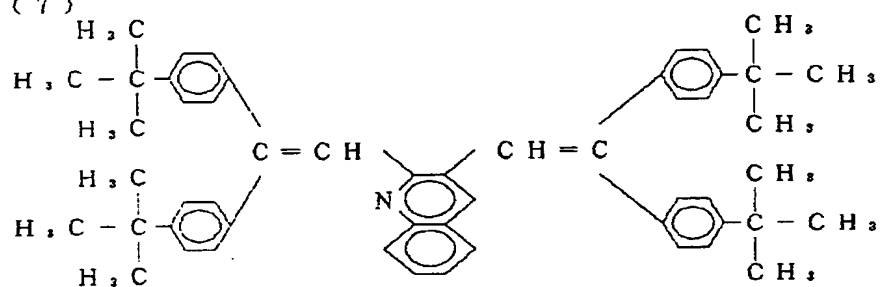
11

12

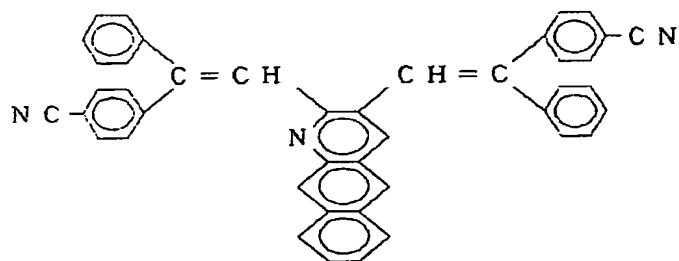
(6)



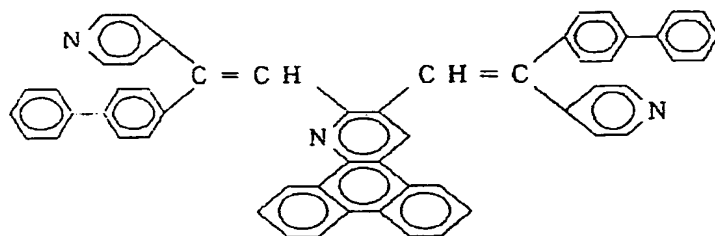
(7)



(8)



(9)

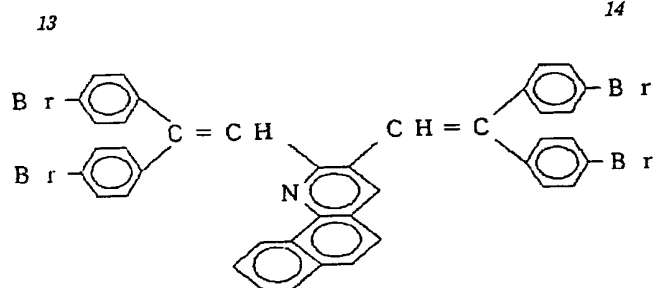


[0022]

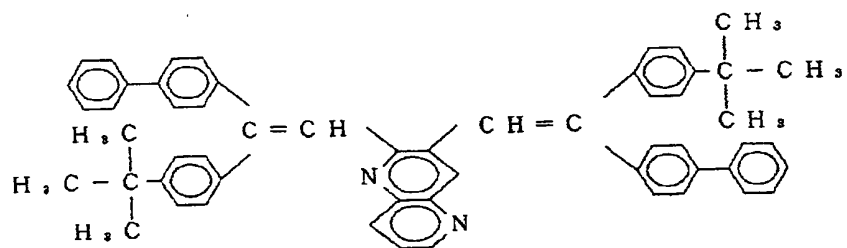
40 [化11]

(8)

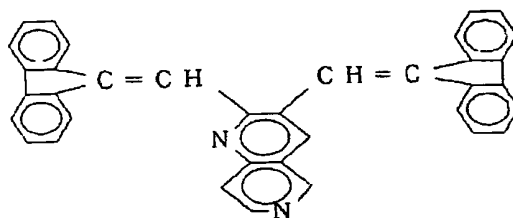
(10)



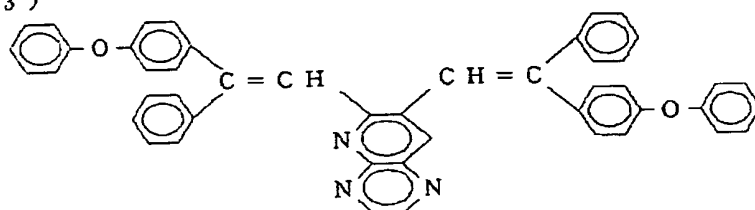
(11)



(12)



(13)



[0023]

[化12]

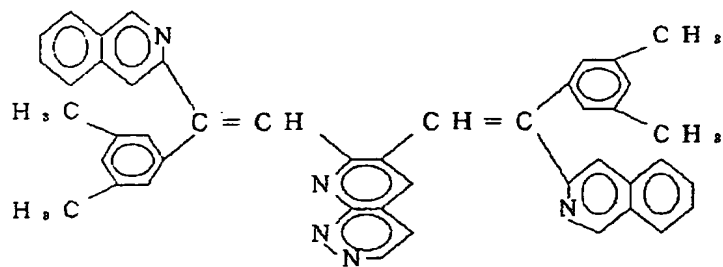
(9)

特開平6-88072

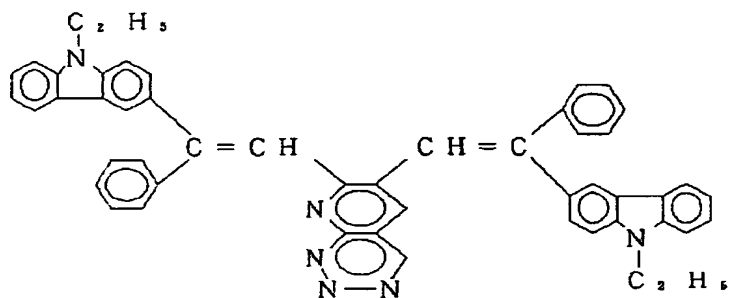
15

16

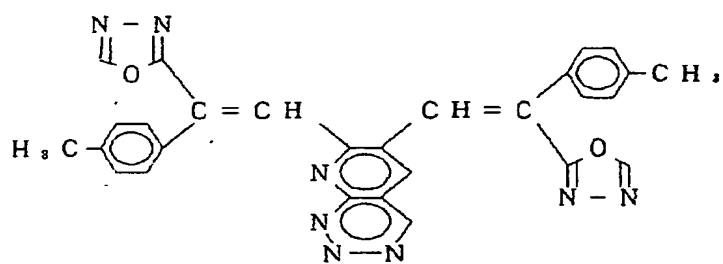
(14)



(15)



(16)



[0024]

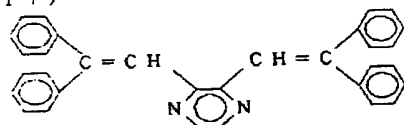
[化13]

(10)

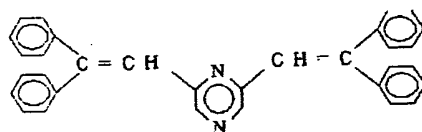
18

17

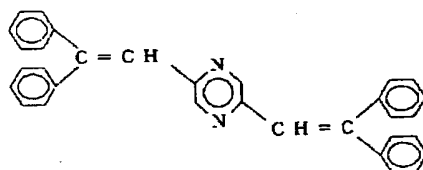
(17)



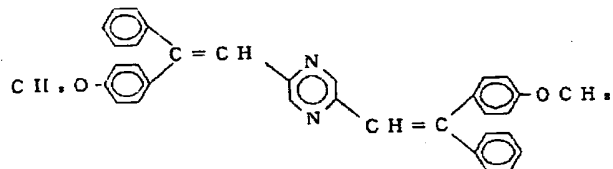
(18)



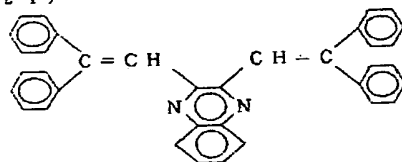
(19)



(20)



(21)



[0025]

[化14]

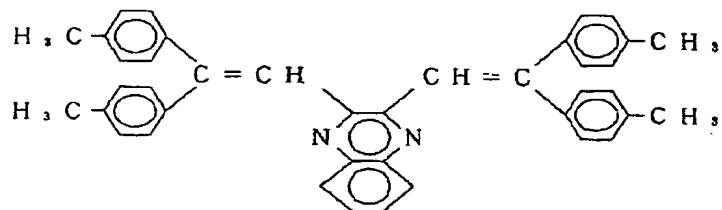
(11)

特開平6-88072

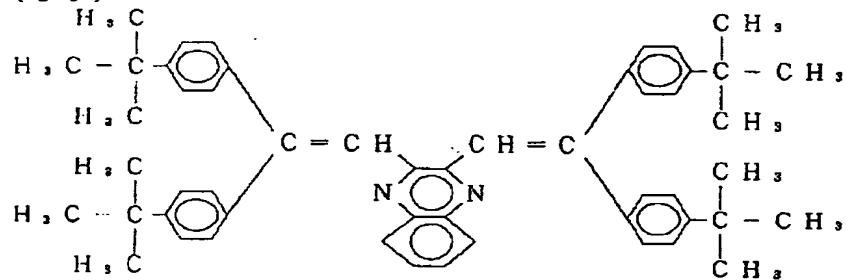
19

20

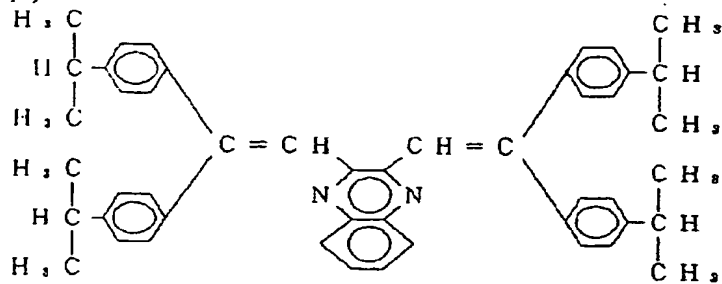
(22)



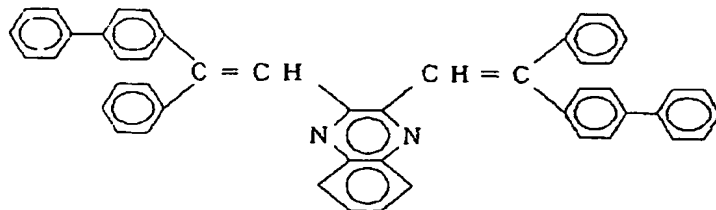
(23)



(24)



(25)



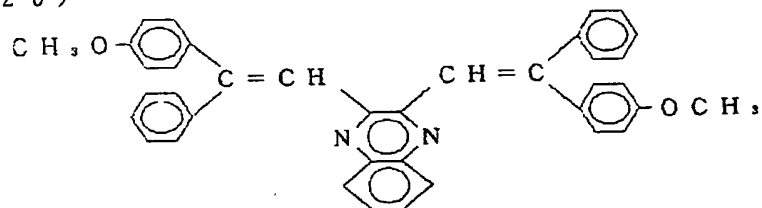
[0026]

40 [化15]

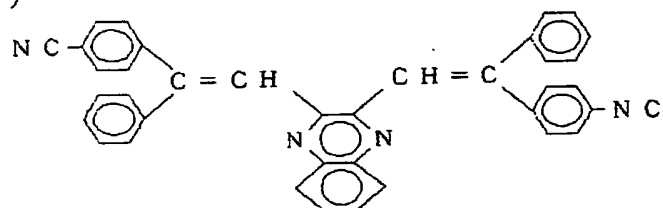
(12)

特開平6-88072

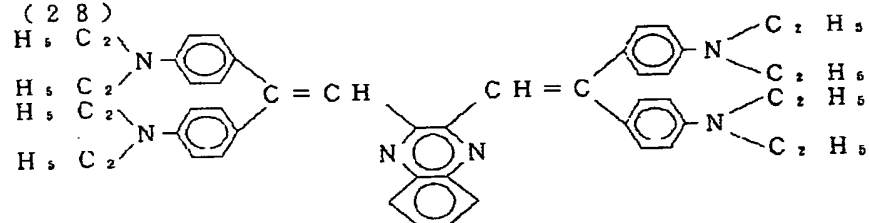
(26)



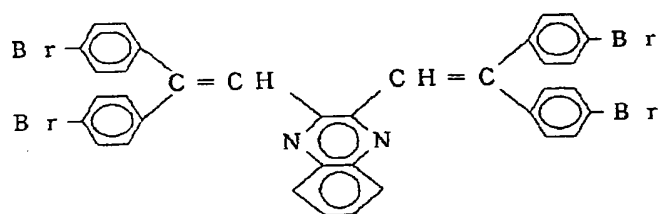
(27)



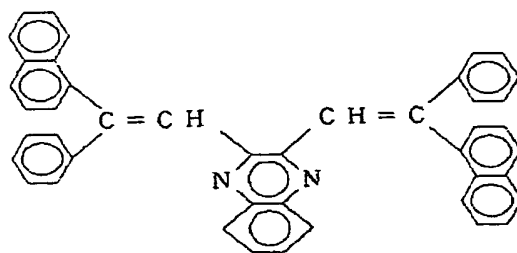
(28)



(29)



(30)



[0027]

[化16]

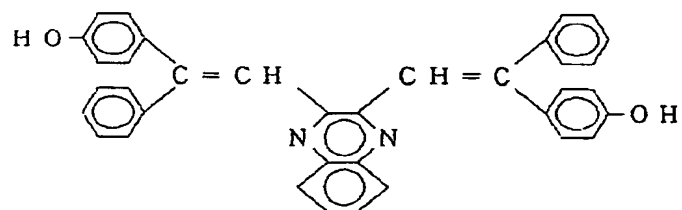
(13)

特開平6-88072

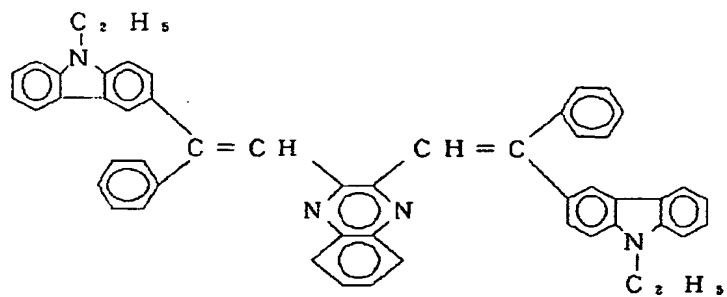
23

24

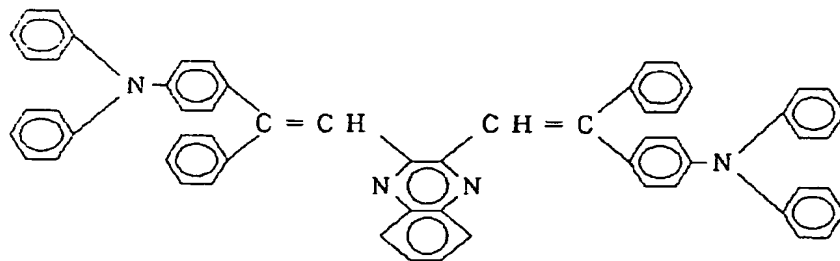
(31)



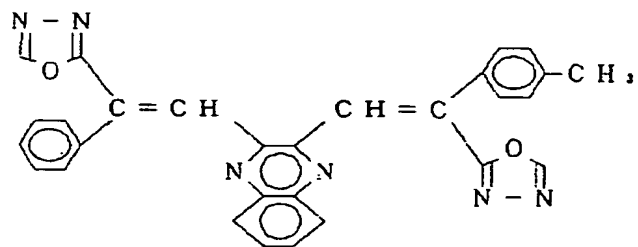
(32)



(33)



(34)



[0028]

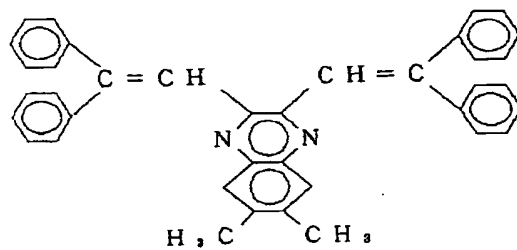
[化17]

(14)

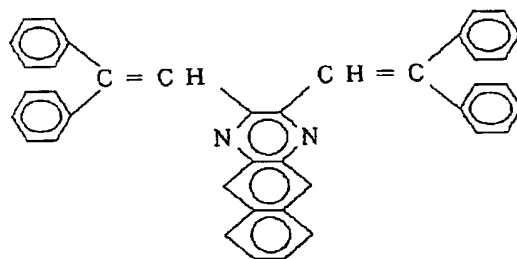
特開平6-88072

²⁵
(35)

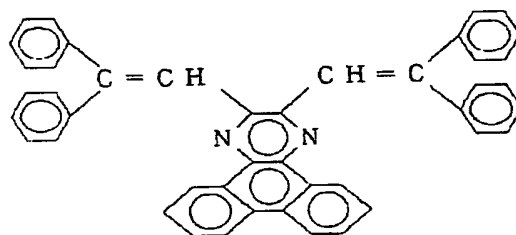
²⁶



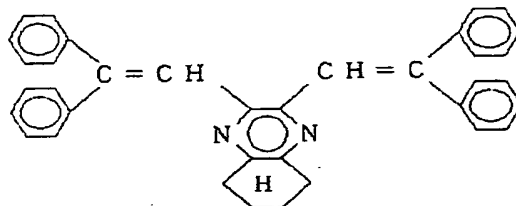
(36)



(37)



(38)



[0029]

40 [化18]

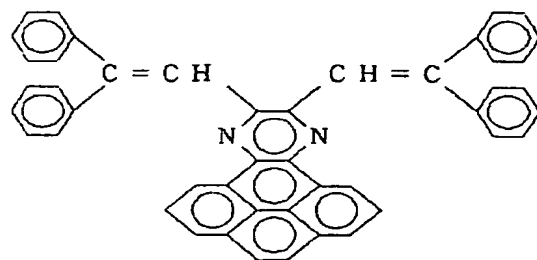
(15)

特開平6-88072

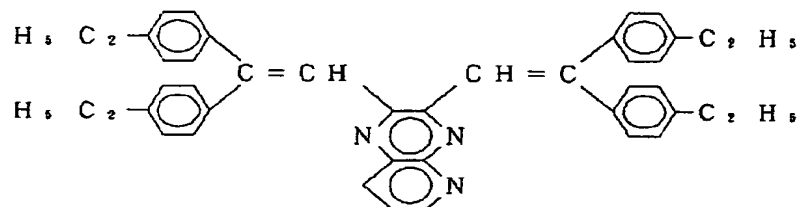
(39)

27

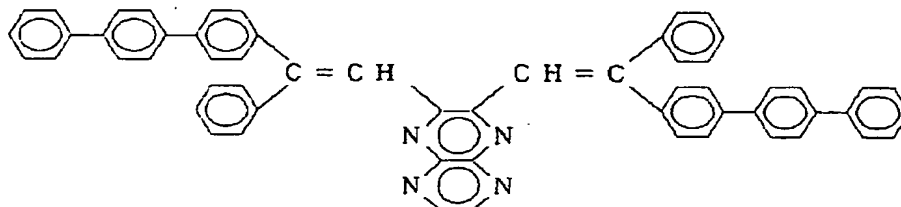
28



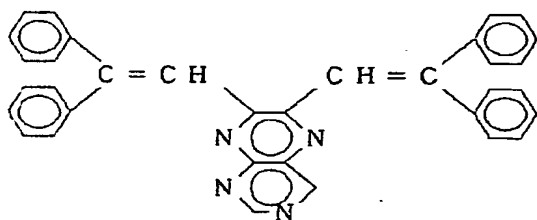
(40)



(41)



(42)



[0030]

[化19]

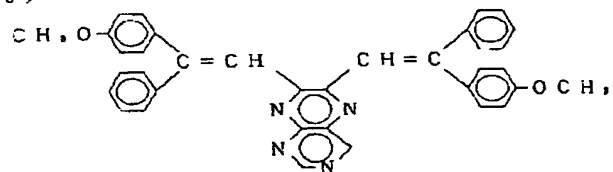
(16)

特開平6-88072

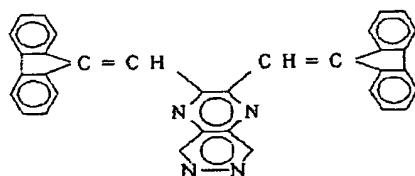
29

30

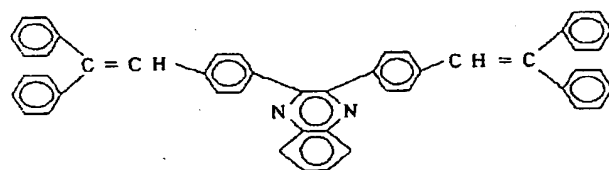
(43)



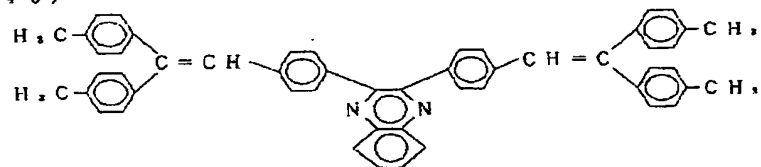
(44)



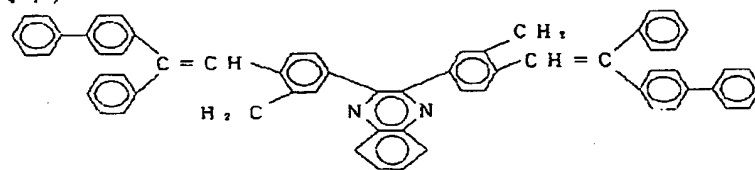
(45)



(46)



(47)

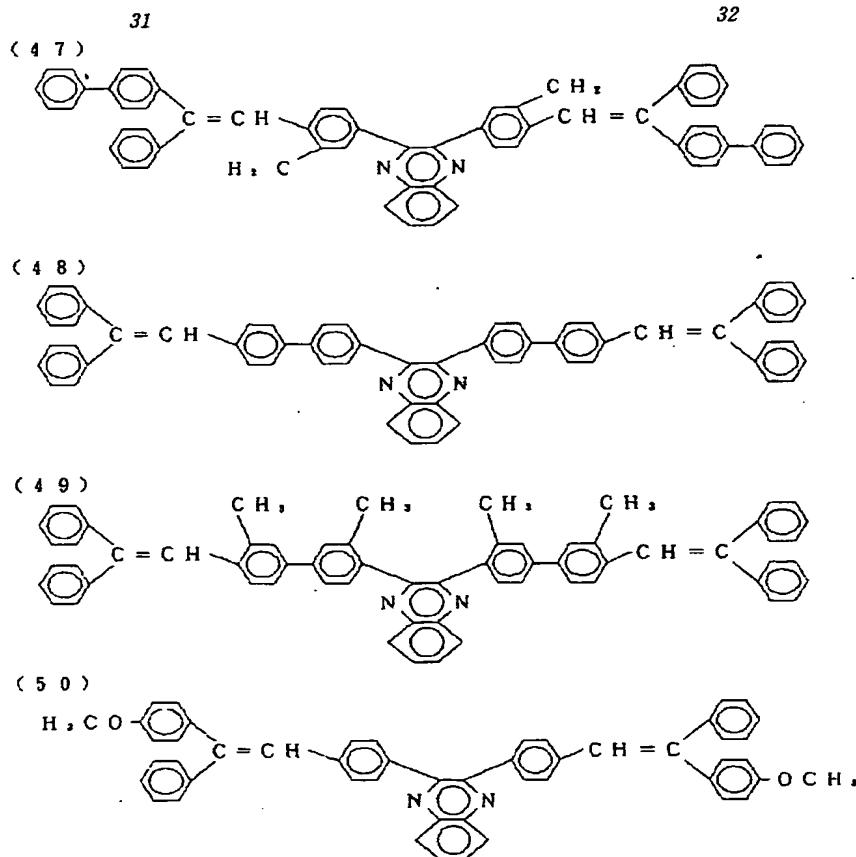


[0031]

[化20]

(17)

特開平6-88072

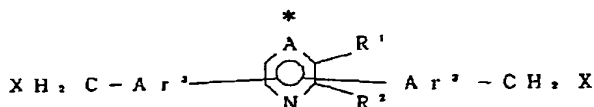


【0032】などが挙げられる。なお、一般式(1)で表される複素環スチリル化合物は、1分子中に2つのオレフィン部位(=C=CH-)を有している。このオレフィン部位の幾何異性により、一般式(1)で表される複素環スチリル化合物は大きく分けてシス体、トランス体の組合せがあるが本発明の複素環スチリル化合物はそれらのいずれであってもよく、混合したものであってもよい。

*【0033】上記一般式(1)で表される有機化合物は、通常の方法によって製造することができ、好ましくはArbusow-Michaelis反応を用いて製造するのがよい。このArbusow-Michaelis反応は、次の反応からなる。まず、下記一般式

【0034】

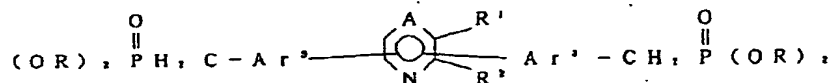
【化21】



【0035】(式中、Xはハロゲン原子を示し、R¹, R², AおよびAr²は前記と同じである。)で表されるハロメチル化合物と下記一般式

【0036】

【化22】

(RO)₂P

... (11)

【0037】(式中、Rは炭素数1~4のアルキル基またはフェニル基を示す。)で表される亜リン酸トリアルキルあるいは亜リン酸トリフェニルを反応させることにより、一般式(II)

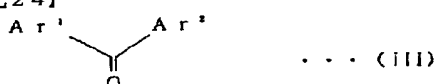
【0038】

【化23】

【0039】(式中、R、R²、AおよびAr³は前記と同じである。)で表されるホスホン酸エステルが得られる。得られたホスホン酸エステルを、塩基の存在下、一般式(III)

【0040】

【化24】



【0041】(式中、Ar¹およびAr²は前記と同じである。)で表されるケトンとカップリング反応させることにより一般式(1)で表される有機化合物を得ることができる。ここで用いる反応溶媒としては、炭化水素、アルコール類、エーテル類が好適用いられる。具体的には、メタノール；エタノール；イソプロパノール；ブタノール；2-メトキシエタノール；1,2-ジメトキシエタン；ビス(2-メトキシエチル)エーテル；ジオキサン；テトラヒドロフラン；トルエン；キシレン；ジメチルスルホキシド；N,N-ジメチルホルムアミド；N-メチルピロリドン；1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノンなどが挙げられる。中でもテトラヒドロフラン、ジメチルスルホキシドが好適である。また、縮合剤としては苛性ソーダ、苛性カリ、ナトリウムアミド、水素化ナトリウム、n-ブチルリチウム、ナトリウムメチラートおよびカリウム-t-ブトキシドなどのアルコラートが好ましく、特にn-ブチルリチウムおよびカリウム-t-ブトキシドが好ましい。反応温度は、用いる反応原料の種類や条件により、一義的に定めることはできないが、通常は室温〜約100℃までの広範囲を選択することができ、室温が特に好ましい。

【0042】このようにして得られる本発明の複素環含有スチリル化合物(以下、スチリル化合物と呼ぶ。)は、低電圧で高輝度の発光が可能なEL素子の材料として有効に利用できるものである。この本発明のスチリル化合物は、電極の付着性および薄膜性にすぐれており、全体として均一発光が得られる。さらに、このスチリル化合物は、蒸着温度まで加熱しても、分解や変質することなく、均一なアモルファス性薄膜が形成できる上、ピンホールが生成しないという長所がある。すでに述べたように、本発明の前記一般式(1)で表されるスチリル化合物は、種々の構成層に用いられるが、特にEL素子における発光層(あるいは電子注入輸送層)として有効である。まず、最初に発光層について説明すると、この発光層は、例えば蒸着法、スピンコート法、キャスト法などの公知の方法によって、一般式(1)の化合物を薄膜化してことにより形成することができるが、特に分子堆積膜とすることが好ましい。ここで分子堆積膜とは、該化合物の気相状態から沈着され形成された薄膜や、該化合物の溶液状態又は液相状態から固体化され形成された膜のことであり、例えば蒸着膜などを示すが、通常こ

の分子堆積膜はLB法により形成された薄膜(分子累積膜)とは区別することができる。また、該発光層は、特開昭59-194393号公報などに開示されているように、樹脂などの結着剤と該化合物とを、溶剤に溶かして溶液としたのち、これをスピンコート法などにより薄膜化し、形成することができる。このようにして形成された発光層の薄膜については特に制限はなく、適宜状況に応じて選ぶことができるが、通常5nmないし5μmの範囲で選定される。このEL素子における発光層は、

(1)電界印加時に、陽極又は正孔注入輸送層により正孔を注入することができ、かつ陰極又は電子注入輸送層より電子を注入することができる注入機能、(2)注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる輸送機能、(3)電子と正孔の再結合の場を発光層内部に提供し、これを発光につなげる発光機能などを有している。なお、正孔の注入されやすさと、電子の注入されやすさに違いがあってもよいし、正孔と電子の移動度で表わされる輸送能に大小があってもよいが、どちらか一方の電荷を移動することが好ましい。この発光層に用いる前記一般式(1)で表わされる化合物は、一般にイオン化エネルギーが6.0eV程度より小さいので、適当な陽極金属又は陽極化合物を選べば、比較的的正孔を注入しやすい。また電子親和力は2.8eV程度より大きいので、適当な陰極金属又は陰極化合物を選べば、比較的電子を注入しやすい上、電子、正孔の輸送能力も優れている。さらに固体状態の蛍光性が強いので、該化合物やその会合体又は結晶などの電子と正孔の再結晶時に形成された励起状態を光に変換する能力が大きい。

【0043】本発明の化合物を用いたEL素子の構成は、各種の態様があるが、基本的には、一対の電極(陽極と陰極)間に、前記発光層を挟持した構成とし、これに必要に応じて、正孔注入輸送層や電子注入輸送層を介在させればよい。介在の方法として、ポリマーへのまぎ込みや同時蒸着がある。具体的には(1)陽極/発光層/陰極、(2)陽極/正孔注入輸送層/発光層/陰極、(3)陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極などの構成を挙げることができる。該正孔注入輸送層や電子注入輸送層は、必ずしも必要ではないが、これらの層があると発光性能が一段と向上する。また、前記構成の素子においては、いずれも基板に支持されていることが好ましく、該基板については特に制限はなく、従来EL素子に慣用されているもの、例えばガラス、透明プラスチック、石英などから成るものを用いることができる。このEL素子における陽極としては、仕事関数の大きい(4eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としてはAuなどの金属、CuI、ITO、SnO₂、ZnOなどの誘電性透明材料が挙げられる。該陽極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により、薄膜を形

成させることにより作製することができる。この電極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また、電極としてのシート抵抗は数百 Ω/mm 以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常10nmないし1 μm 、好ましくは10~200nmの範囲で選ばれる。

【0044】一方、陰極としては、仕事関数の小さい(1eV以下)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、Al/AlO₃、インジウムなどが挙げられる。該陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により、薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、電極としてのシート抵抗は数百 Ω/mm 以下が好ましく、膜厚は通常10nmないし1 μm 、好ましくは50~200nmの範囲で選ばれる。なお、このEL素子においては、該陽極又は陰極のいずれか一方が透明又は半透明であることが、発光を透過するため、発光の取出し効率がよく好都合である。

【0045】本発明の化合物を用いるEL素子の構成は、前記したように、各種の態様があり、前記(2)又は(3)の構成のEL素子における正孔注入輸送層は、正孔伝達化合物からなる層であって、陽極より注入された正孔を発光層に伝達する機能を有し、この正孔注入輸送層を陽極と発光層との間に介在させることにより、より低い電界で多くの正孔が発光層に注入され、その上、発光層に陰極又は電子注入輸送層より注入された電子は、発光層と正孔注入輸送層の界面に存在する電子の障壁により、この発光層内の界面付近に蓄積され発光効率が向上するなど、発光性能の優れた素子となる。前記正孔注入輸送層に用いられる正孔伝達化合物は、電界を与えられた2個の電極間に配位されて陽極から正孔が注入された場合、該正孔を適切に発光層へ伝達しうる化合物であって、例えば $10^1 \sim 10^6 \text{ V/cm}$ の電界印加時に、少なくとも $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{秒}$ の正孔移動度をもつものが好適である。このような正孔伝達化合物については、前記の好ましい性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導電材料において、正孔の電荷輸送材として慣用されているものやEL素子の正孔注入輸送層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

【0046】該電荷輸送材としては、例えばトリアゾール誘導体(米国特許第3,112,197号明細書などに記載のもの)、オキサジアゾール誘導体(米国特許第3,189,447号明細書などに記載のもの)、イミダゾール誘導体(特開昭37-16096号公報などに記載のもの)、ポリアリーラルカン誘導体(米国特許第3,615,402号明細書、同3,820,989号明細書、同3,5

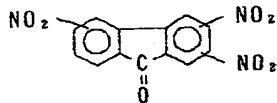
42,544号明細書、特公昭45-555号公報、同51-10983号公報、特開昭51-93224号公報、同55-17105号公報、同56-4148号公報、同55-108667号公報、同55-156953号公報、同56-36656号公報などに記載のもの)、ピラゾリン誘導体及びピラズロン誘導体(米国特許第3,180,729号明細書、同4,278,746号明細書、特開昭55-88064号公報、同55-88065号公報、同49-105537号公報、同55-51086号公報、同56-80051号公報、同56-88141号公報、同57-45545号公報、同54-112637号公報、同55-74546号公報などに記載のもの)、フェニレンジアミン誘導体(米国特許第3,615,404号明細書、特公昭51-10105号公報、同46-3712号公報、同47-25336号公報、特開昭54-53435号公報、同54-110536号公報、同54-119925号公報などに記載のもの)、アリーラルミン誘導体(米国特許第3,567,450号明細書、同3,180,703号明細書、同3,240,597号明細書、同3,658,520号明細書、同4,232,103号明細書、同4,175,961号明細書、同4,012,376号明細書、特公昭49-35702号公報、同39-27577号公報、特開昭55-144250号公報、同56-119132号公報、同56-22437号公報、西独特許第1,110,518号明細書などに記載のもの)、アミノ置換カルコン誘導体(米国特許第3,526,501号明細書などに記載のもの)、オキサゾール誘導体(米国特許第3,257,203号明細書などに記載のもの)、スチリルアントラセン誘導体(特開昭56-46234号公報などに記載のもの)、フルオレノン誘導体(特開昭54-110837号公報などに記載のもの)、ヒドラゾン誘導体(米国特許第3,717,462号明細書、特開昭54-59143号公報、同55-52063号公報、同55-52064号公報、同55-46760号公報、同55-85495号公報、同57-11350号公報、同57-148749号公報などに記載されているもの)、スチルベル誘導体(特開昭61-210363号公報、同61-228451号公報、同61-14642号公報、同61-72255号公報、同62-47646号公報、同62-36674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-93445号公報、同60-94462号公報、同60-174749号公報、同60-175052号公報などに記載のもの)などを挙げる事ができる。

【0047】これらの化合物を正孔伝達化合物として使用することができるが、次に示すポリフィリン化合物(特開昭63-295695号公報などに記載のもの)及び芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物(米国特許第4,127,412号明細書、特開昭53-

37

27033号公報, 同54-58445号公報, 同54-149634号公報, 同54-64299号公報, 同55-79450号公報, 同55-144250号公報, 同56-119132号公報, 同61-295558号公報, 同61-98353号公報, 同63-295695号公報などに記載のもの、特に該芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

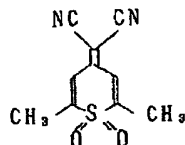
【0048】該ポリフィリン化合物の代表例としては、ボルフィリン；5, 10, 15, 20-テトラフェニル-21H, 23H-ボルフィリン銅(II)；5, 10, 15, 20-テトラフェニル-21H, 23H-ボルフィリン亜鉛(II)；5, 10, 15, 20-テトラキス(ペンタフルオロフェニル)-21H, 23H-ボルフィリン；シリコンフタロシアニンオキシド；アルミニウムフタロシアニクロリド；フタロシアニン(無金属)；ジリチウムフタロシアニン；銅テトラメチルフタロシアニン；銅フタロシアニン；クロムフタロシアニン；亜鉛フタロシアニン；鉛フタロシアニン；チタニウムフタロシアニンオキシド；マグネシウムフタロシアニン；銅オクタメチルフタロシアニンなどが挙げられる。また該芳香族第三級化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノビフェニル；N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(3-メチルフェニル)-4, 4'-ジアミノビフェニル；2, 2'-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)プロパン；1, 1'-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン；N, N, N', N'-テトラ-*p*-トリル-4, 4'-ジアミノビ*



【0051】などのニトロ置換フルオレノン誘導体、

【0052】

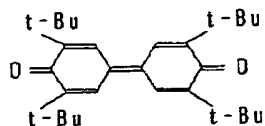
【化26】



【0053】などのチオピランジオキシド誘導体、

【0054】

【化27】



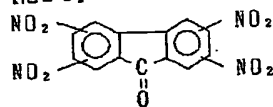
38

*フェニル；1, 1'-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)-4-フェニルシクロヘキサン；ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン；ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)フェニルメタン；N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(4-メトキシフェニル)-4, 4'-ジアミノビフェニル；N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル；4, 4'-ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル；N, N, N'-トリ(*p*-トリル)アミン；4-(ジ-*p*-トリルアミノ)-4'-[4-(ジ-*p*-トリルアミノ)スチリル]スチルベン；4-N, N'-ジフェニルアミノ-(2-ジフェニルビニル)ベンゼン；3-メトキシ-4'-N, N'-ジフェニルアミノスチルベン；N-フェニルカルバゾールなどが挙げられる。

【0049】上記EL素子における該正孔注入輸送層は、これらの正孔伝達化合物一種又は二種以上からなる一層で構成されてもよいし、あるいは、前記層とは別種の化合物からなる正孔注入層を積層したものであってもよい。一方、前記(3)の構成のEL素子における電子注入輸送層は、電子伝達化合物からなるものであって、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有している。このような電子伝達化合物について特に制限はなく、従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。該電子伝達化合物の好ましい例としては、

【0050】

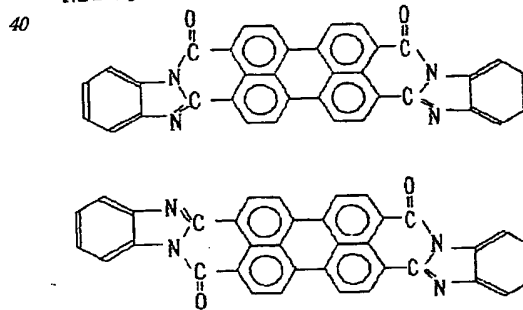
【化25】



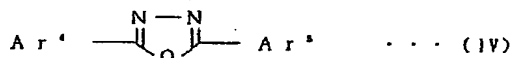
【0055】などのジフェニルキノン誘導体〔「ポリマー・プレプリント(Polymer Preprints)」、ジャパン第37巻、第3号、第681ページ(1988年)などに記載のもの〕、あるいは

【0056】

【化28】



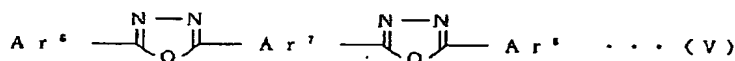
【0057】などの化合物〔「ジャーナル・オブ・アプライド・フィジックス (J. Apply. Phys.)」第27巻, 第269頁 (1988年) などに記載のもの〕や、アントラキノジメタン誘導体 (特開昭57-149259号公報, 同58-55450号公報, 同61-225151号公報, 同61-233750号公報, 同63-104061号公報などに記載のもの)、フレオレニリデンメタン誘導体 (特開昭60-69657号公報, 同61*



*-143764号公報, 同61-148159号公報などに記載のもの)、アントロン誘導体 (特開昭61-225151号公報, 同61-233750号公報などに記載のもの) などを挙げることができる。また、次の一般式 (IV) 及び (V)

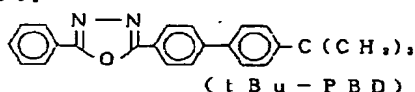
【0058】

【化29】

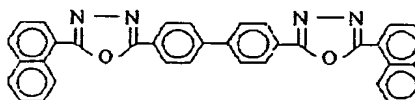
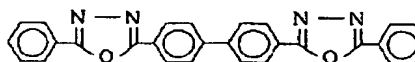


【0059】(式中、 $\text{Ar}^6 \sim \text{Ar}^8$ 及び Ar^7 はそれぞれ独立にアリール基を示し、 Ar^7 はアリーレン基を示す。これらのアリール基及びアリーレン基は置換されていても、置換されていなくてもよい。) で表される化合物を挙げることができる。ここで、アリール基としては、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントラニル基、ペリレニル基、ピレニル基等が挙げられ、アリーレン基としては、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントラセニレン基、ペリレニレン基、ピレニレン基等が挙げられる。また、置換基としては、炭素数1~10のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基又はシアノ基等が挙げられる。この一般式 (IV) 及び (V) で表される化合物は、薄膜形成性のものが好ましい。この一般式 (IV) 及び (V) で表される化合物の具体例としては、

※【化30】



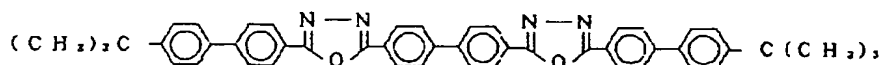
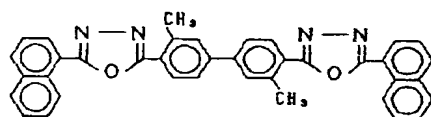
20



【0061】

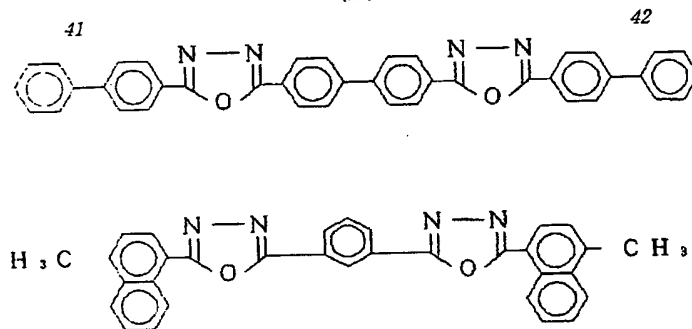
【化31】

※30



【0062】

40 【化32】



【0063】等が挙げられる。なお、正孔注入輸送層及び電子注入輸送層は電子の注人性、輸送性、障害性のいずれかを有する層であり、上記した有機材料の他にSi系、SiC系、CdS系等の結晶性ないし非結晶性材料を用いることもできる。有機材料を用いた正孔注入輸送層及び電子注入輸送層は発光層と同様にして形成することができ、無機材料を用いた正孔注入輸送層及び電子注入輸送層は真空蒸着法やスパッタリング等によりできるが、有機または無機のいずれの材料を用いた場合でも発*

*光層のときと同様の理由から真空蒸着法により形成することが好ましい。

【0064】

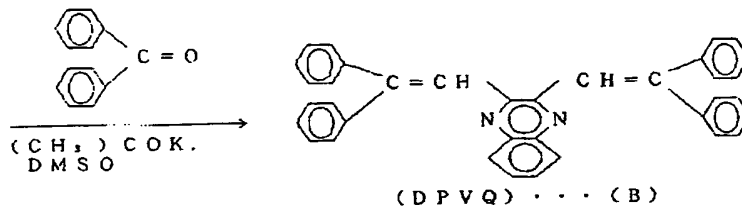
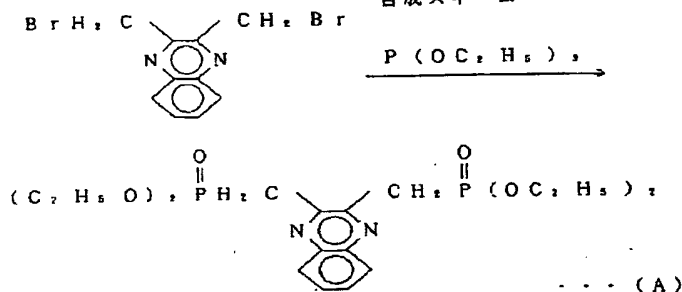
【実施例】次に本発明を合成例、実施例および比較例により、さらに詳しく説明する。本発明は、これらの例によって何ら限定されるものではない。

合成例1

【0065】

【化33】

合成スキーム



【0066】2, 3-ビス(ブロモメチル)キノキサリン(アルドリッチ製) 5.0 g (0.015 mol) と亜リン酸トリエチル10ミリリットルを3つ口フラスコへ入れ、オイルバス温度100℃、フラスコ内温度80～84℃にて2時間加熱攪拌した。放冷後、灰白色沈澱をn-ヘキサン100ミリリットルで洗浄し、減圧乾燥した。その結果、6.7 g (定量的)の灰白色粉末(A)を得た。この灰白色粉末(A)の融点は、91～93℃であった。得られた灰白色粉末(A)のプロトン核磁気共鳴(¹H-NMR)スペクトルの測定結果を以下に示す。

¹H-NMR (溶媒: CDCl₃, 標準: テトラメチルシラン(TMS))

δ(ppm) = 7.5～8.1 (m, 4H: キノキサリン骨格のH)

δ(ppm) = 3.9～4.5 (q, 8H: エトキシ基)

δ(ppm) = 3.9 (d, 4H: -CH₂-, J=12 Hz)

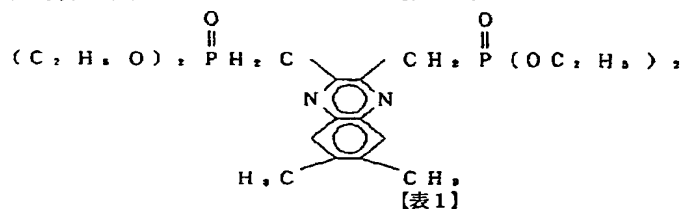
δ(ppm) = 1.4 (t, 12H: エトキシ基)

次いで、(A)のホスホン酸エステル1.3 g (3.02 × 10⁻³ mol) とベンゾフェノン1.2 g (6.58 × 10⁻³ mol) をアルゴンガス気流下、室温にてジメチルスルホ

50

キシド (DMSO) 50ミリリットルに懸濁させた。これに、カリウム-*t*-ブトキシド0.6g (5.35×10^{-4} モル)を加えた結果、反応液は直ちに赤茶色懸濁液を呈した。そのまま室温で8時間攪拌した後、氷50g投入し、塩化メチレン100ミリリットルで抽出した。塩化メチレン相を炭酸カリウムにて乾燥し、シリカゲルカラムにて精製を行った結果、黄色の溶出液が得られた。得られた溶出液の溶媒を除去した後、アセトン：*n*-ヘキサン=1：9（体積／体積）にて再結晶を行った。その結果、白色針状結晶0.3g（収率：22%）が得られた。得られた白色針状結晶の融点は、152～153℃であった。また、得られた白色針状結晶の質量分析の結果、 $m/z = 486$ のみのピークが得られ、(B)（以下DPVQと略記する。）が合成されていることを確認した。得られたDPVQの吸収スペクトル(DMF中)の測定結果を以下に示す。

*



【0070】

* 270nm ($2.4 \times 10^4 \text{ cm}^{-1} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{リットル}$)

300nm ($2.5 \times 10^4 \text{ cm}^{-1} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{リットル}$)

360nm ($1.3 \times 10^4 \text{ cm}^{-1} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{リットル}$)

【0067】合成例2～6

ベンゾフェノンを対応するケトンに変えた以外は、合成例1と同様にして第1表で示す化合物種を合成した。

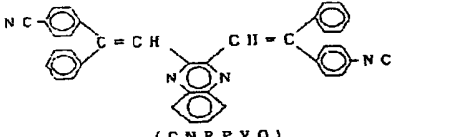
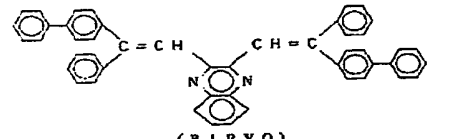
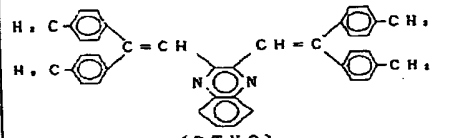
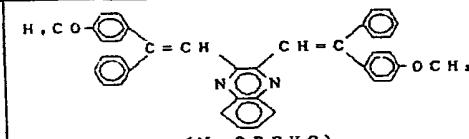
【0068】合成例7

合成例1で用いた(A)のホスホン酸エステルを、下記の6, 7-ジメチルキノキサリンのホスホン酸エステルに代えた以外は、合成例1と同様にして第1表(①)および(②)で示す化合物種を合成した。

【0069】

【化34】

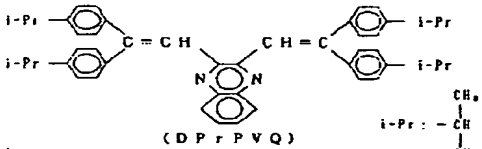
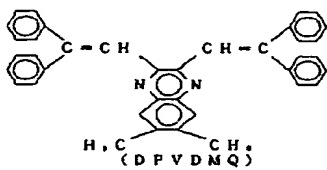
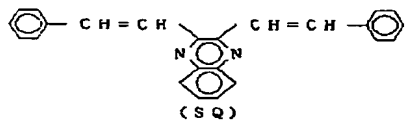
第1表(①)

	化合物 (略号)	物性
合成例2	 (CNPPVQ)	性状：黄色粉末 融点(℃)： 112 ~ 121 質量分析： m/z = 536
合成例3	 (BIPVQ)	性状：淡黄色 斜状結晶 融点(℃)： 203 ~ 205 質量分析： m/z = 638
合成例4	 (DTVQ)	性状：黄色膜片 状結晶 融点(℃)： 226 ~ 227 質量分析： m/z = 542
合成例5	 (MeOPP VQ) 吸収スペクトル(DMF中) 270nm (ε=2.4×10 ⁴ cm ⁻¹ mol ⁻¹ l) 290nm (ε=2.2×10 ⁴ cm ⁻¹ mol ⁻¹ l) 310nm (ε=2.0×10 ⁴ cm ⁻¹ mol ⁻¹ l) 370nm (ε=1.3×10 ⁴ cm ⁻¹ mol ⁻¹ l)	性状：黄色粉末 融点(℃)： 137 ~ 139 質量分析： m/z = 546

[0071]

[表2]

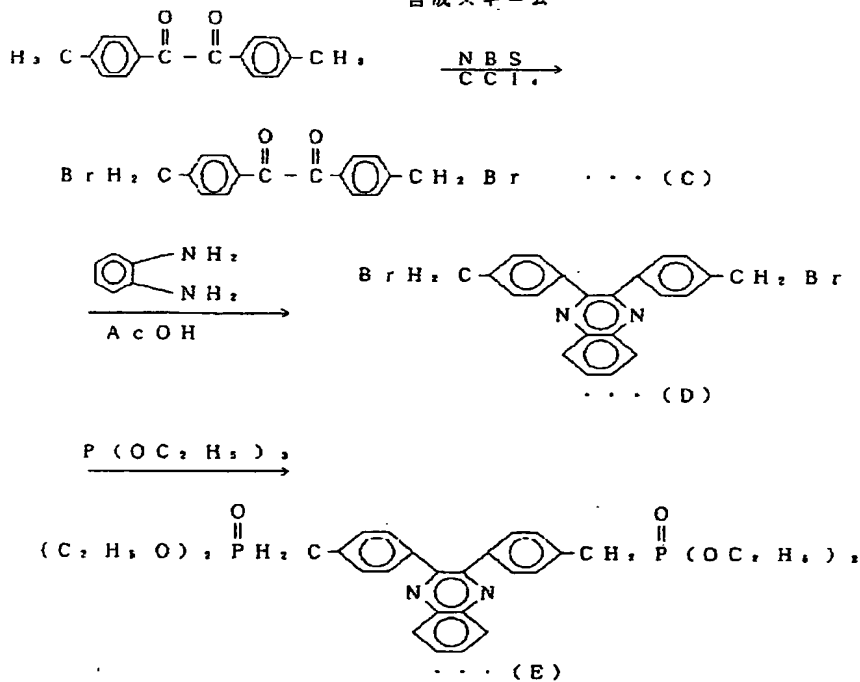
第1表(2)

化合物 (略号)	物性
合成例6  (DPrPVQ) 吸収スペクトル(DMF中) 270nm ($\epsilon = 2.9 \times 10^4 \text{ cm}^{-1} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{l}$) 310nm ($\epsilon = 2.7 \times 10^4 \text{ cm}^{-1} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{l}$) 370nm ($\epsilon = 1.5 \times 10^4 \text{ cm}^{-1} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{l}$)	性状: 淡黄色 柱状結晶 融点(℃): 190~191 質量分析: $m/z = 554$
合成例7  (DPVDMQ)	性状: 黄色柱状 結晶 融点(℃): 184~185 質量分析: $m/z = 514$
比較例用  (SQ) 吸収スペクトル(DMF中) 300nm ($\epsilon = 3.7 \times 10^4 \text{ cm}^{-1} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{l}$) 390nm ($\epsilon = 1.4 \times 10^4 \text{ cm}^{-1} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{l}$)	性状: 橙色針状 結晶 融点(℃): 196~197 質量分析: $m/z = 334$

【0072】合成例8

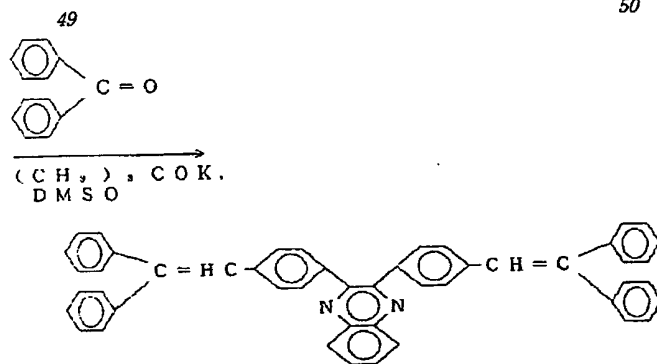
*【化35】

【0073】

*
合成スキーム

【0074】

50 【化36】



【0075】4, 4'-ジメチルベンジル2.0g (8.3 × 10⁻³モル), N-プロモスクシンイミド (NBS) 3.0g (0.0168モル) および過酸化ベンゾイル0.14g (5.8 × 10⁻⁴モル) を四塩化炭素100ミリリットルに懸濁させた。これを、外温100℃にて2時間還流撹拌した。一晩放置後、析出した黄色沈澱をメタノール100ミリリットルで2回洗浄して1.7gの黄色粉末 (C) を得た (収率: 50%)。この黄色粉末 (C) の融点は、196~197℃であった。得られた黄色粉末 (C) の¹H-NMRスペクトルの測定結果を以下に示す。

¹H-NMR (溶媒: CDCl₃, 標準: テトラメチルシラン (TMS))

δ (ppm) = 7.4~8.0 (q, 8H: 芳香環のH)

δ (ppm) = 4.5 (q, 4H: 臭化メチル基)

次いで、(C) のホスホン酸エステル1.6g (4.0 × 10⁻³モル) とo-フェニレンジアミン0.5g (4.6 × 10⁻³モル) を酢酸70ミリリットルに懸濁し、80℃で30分間加熱撹拌した。反応終了後、得られた白色沈澱を水50ミリリットルで2回洗浄し、シリカゲルカラムにて精製 (展開液: 塩化メチレン) を行った結果、白色粉末 (D) 1.8g (収率: 96%) が得られた。得られた白色粉末の融点は、172~173℃であった。得られた白色粉末 (D) のプロトン核磁気共鳴 (¹H-NMR) スペクトルの測定結果を以下に示す。

¹H-NMR (溶媒: CDCl₃, 標準: テトラメチルシラン (TMS))

δ (ppm) = 8.3 (m, 12H: キノキサリン骨格および芳香環のH)

δ (ppm) = 4.5 (s, 4H: 臭化メチル基)

得られた (D) 1.8g (3.8 × 10⁻³モル) へ、亜リン酸トリエチル12ミリリットルを加え、内温85℃で3時間加熱撹拌した。一晩放置後、得られた白色沈澱をn-ヘキサン50ミリリットルで洗浄した結果、淡黄色粉末 (E) 1.4g (収率: 64%) が得られた。得られた

淡黄色粉末の融点は、129~131℃であった。得られた淡黄色粉末 (E) の¹H-NMRスペクトルの測定結果を以下に示す。

¹H-NMR (溶媒: CDCl₃, 標準: テトラメチルシラン (TMS))

δ (ppm) = 8.3~7.0 (m, 12H: キノキサリン骨格および芳香環のH)

δ (ppm) = 4.1 (q, 8H: エトキシ基)

δ (ppm) = 3.2 (d, 4H: -CH₃ P, J = 16 Hz)

δ (ppm) = 1.3 (t, 12H: エトキシ基)

得られたホスホン酸エステル (E) 1.4g (2.6 × 10⁻³モル), ベンゾフェノン1.0g (5.5 × 10⁻³モル) およびカリウム-t-ブトキシド0.6g (5.3 × 10⁻³モル) をジメチルスルホキシド50ミリリットルに懸濁させた。これを、アルゴンガス雰囲気下、室温にて3時間還流撹拌した。一晩放置後、反応液をメタノール50ミリリットルを加えて析出した沈澱を濾取した。シリカゲルカラムにて精製 (展開液: 塩化メチレン) を行った後、目的のフラクションをアセトン・n-ヘキサ

ン混合溶液により再結晶して0.9gの黄色粉末 (F) を得た (収率: 37%)。この黄色粉末 (F) の融点は、198~199℃であった。得られた黄色粉末 (F) の¹H-NMRスペクトルの測定結果を以下に示す。

¹H-NMR (溶媒: CDCl₃, 標準: テトラメチルシラン (TMS))

δ (ppm) = 6.7~8.2 (m, 34H: 芳香環, キノキサリン環およびC=HCの-H)

また、得られた黄色粉末の質量分析の結果、m/Z = 638のみのピークが得られ、(F) (DPVPQ) が合成されていることを確認した。

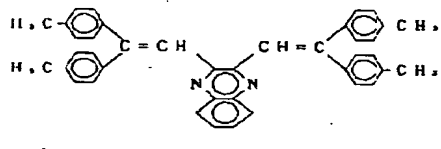
【0076】合成例9

ベンゾフェノンを4, 4'-ジメチルベンゾフェノンに代えた以外は、合成例8と同様にして第1表 (3) で示す化合物種を合成した。

[0077]

* * [表3]

第1表 (国)

化合物 (略号)	物性
 (DTVPQ)	性状：黄色粉末 融点(℃)： 182.0 ~ 183.5 質量分析： m/z = 694

[0078] 実施例1

25mm×75mm×1.1mmのガラス基板上(HOYA社製, NA40)に、ITOを蒸着法にて100nmの厚さで製膜したもの(HOYA製、陽極に相当)を透明支持基板とした。なお、この基板は、イソプロピルアルコール中で5分間さらに純粋中で5分間超音波洗浄後、空素を吹きつけて乾燥し、UVオゾン洗浄装置(UV300, (株)サムコインターナショナル研究所製)により基板温度150℃で20分間洗浄を行ったものである。この透明支持基板上に市販の真空蒸着装置(日本真空技術(株)製)の基板ホルダーに固定し、モリブデン製抵抗加熱ポートにCu配位のフタロシアニン(以下、CuPcと略す。)を200mg入れ、他のモリブデン製抵抗加熱ポートに、N'-ビス(3-メチルフェニル)-N,N'-ジフェニル(1,1'-ビフェニル)-4,4'-ジアニン(以下、TPD(p)と略す。)を200mg入れ、さらに別のモリブデン製抵抗加熱ポートに4,4'-ビス(2,2-ジフェニルビニル)ビフェニル(以下、DPVBiと略す。)を200mg入れ、真空槽内を1×10⁻⁴Paまで減圧した。その後、CuPcの入った前記ポートを350℃程度まで加熱し、蒸着速度0.1~0.3nm/秒でITO膜上にCuPcを蒸着して、膜厚20nmのCuPc層を設けた。このとき、基板の温度は室温であった。これを真空槽より取り出すことなく、TPD(p)を入れたポートを250℃程度まで加熱し、蒸着速度0.1~0.3nm/秒でCuPc層上にTPD(p)を蒸着させて膜厚40nmのTPD(p)層を設けた。このときの基板温度は室温であった。このようにして設けたCuPc層とTPD(p)層の2層が、正孔輸送層に相当する。次にDPVBiを入れたポートを240℃程度まで加熱し、蒸着速度0.1~0.3nm/秒でTPD(p)層上にDPVBiを蒸着させて膜厚40nmの発光層を設けた。次に、3層の有機層を形成した透明支持基板を真空層から取り出し、発光層の上にステンレススチール製のマスクを配置して再び基板ホルダーに固定した。また、モリブデン製抵抗加熱ポートに合成例1で得られた2,3-ビス(2,2-ジフェニルビニル)キノキサリン(以下、DPVQと略す。)を200mgを入れ、真空槽に装着した。次に、マグネシウムリボン1gを入れたモリブデ

ン製抵抗加熱ポートと銀ワイヤー500mgを入れたタングステン製バスケットを真空槽に装着した。その後、真空槽を1×10⁻⁴Paまで減圧した。減圧後、DPVQの入った前記ポートを通电して216℃まで加熱し、蒸着速度0.1~0.3nm/秒で上記発光層に蒸着して、膜厚20nmの電子注入輸送層を設けた。次いで、銀ワイヤーを入れたタングステン製バスケットに通电して蒸着速度0.1nm/秒で銀を蒸着させると同時に、マグネシウムリボン入りのポートに通电して蒸着速度1.4~2.0nm/秒でマグネシウムを蒸着させた。この二元同時蒸着により、DPVQ層上に膜厚200nmのマグネシウム-銀層(陰極に相当)が形成された。以上のようにして、目的の有機EL素子(ITO/CuPc/TPD(p)/DPVBi/DPVQ/Mg:Ag)が得られた。得られた有機EL素子に、電圧10Vを印加した結果、3.5mA/cm²の電流が流れ、60cd/m²の高輝度の青色発光が観測された。このとき、発光効率は0.5ルーメン/Wであった。また、蛍光スペクトルの測定結果より、発光のピーク波長は474nmであり、DPVBiからの発光と確認された。この素子を100cd/m²の輝度で発光させ、輝度計(CS-100, ミノルタカメラ(株)製)を用いて観測したところ、観察領域が素子作成直後においても、1日経過後においても均一発光(直径10μm以上の無発光領域もしくは発光むらは無かった。)であった。

[0079] 実施例2~8

電子注入輸送層として用いたDPVQの代わりに、第2表に記載の化合物を用い、蒸着時の加熱ポート温度を第2表に記載のように変えた以外は、実施例1と同様の方法で有機EL素子を作製して評価した。得られた結果を第2表に示す。

[0080] 比較例1

電子注入輸送層として用いたDPVQの代わりに、第2表に記載の化合物を用い、蒸着時の加熱ポート温度を第2表に記載のように変えた以外は、実施例1と同様の方法で有機EL素子を作製して評価した。得られた結果を第2表に示す。

[0081] 比較例2

電子注入輸送層を用いず、発光材料であるDPVBiに直接陰極を付けた以外は、実施例1と同様の方法で有機

E.L.素子を作製して評価した。得られた結果を第2表に示す。 * 【0082】
* 【表4】

第2表

	電子注入輸送材料	ゾート温度(℃)	印加電圧(V)	電流密度(mA/cm ²)	発光輝度(cd/m ²)	発光ピーク波長(nm)	均一性
実施例2	合成例2のCNPVPQ	248	12.5	5.3	50	482	○
実施例3	合成例3のBiPVPQ	258	12	1.8	100	482	○
実施例4	合成例4のDTPVQ	240	13	9.9	50	487	○
実施例5	合成例5のMeOPVPQ	250~260	10	21	100	486	○
実施例6	合成例6のDPVPVPQ	230~240	13	9.8	100	486	○
実施例7	合成例7のDPVDMQ	220	13	8	150	489	○
実施例8	合成例8のDTPVPQ	250~260	13	41	105	489	○
比較例1	SQ	208	10	5.6	20	486	△
比較例2	なし	-	7.5	9.8	130	475	×

【0083】*均一性の評価

○：観察領域が素子作製直後でも、1日経過後でも均一発光である。

△：観察領域が素子作製直後においては均一発光であるが、1日経過後は直径10μm以下の無発光領域もしくは発光むらがある。

×：観察領域が素子作製直後においても、1日経過後でも直径10μm以下の無発光領域もしくは発光むらがある。

【0084】比較例1で示したように、電子注入輸送層としてSQを用いたものは、陰極金属の付着性は良好であるが、SQ自身の薄膜性が劣っているため時間経過と共に結晶化してしまい、発光の均一性が劣る。また、比較例2より明らかなように、発光材料のDPVBi上に直接陰極金属を付けた素子は、発光材料の薄膜性は良好であるが、金属の付着性が非常に劣るため発光の均一性に劣っている。

【0085】実施例9

実施例1と同様にして正孔注入輸送層を製膜した。次に最初にセットしておいた合成例8のDPVPQ200mg入りのモリブデン製抵抗加熱ポートを通電して290℃まで加熱し、蒸着速度0.1~0.3nm/秒で上記正孔注入輸送層に蒸着して、膜厚40nmの発光層を製膜させた。次に、得られた正孔注入輸送層を形成した透明支持基板を真空槽から取り出し、正孔注入輸送層の上にステンレススチール製のマスクを配置して再び基板ホルダーに固定した。次に、マグネシウムリボン1gを入れたモリブデン製抵抗加熱ポートと銀ワイヤー500mgを

20 入れたタングステン製バスケットを真空槽に装着した。次いで、銀ワイヤーを入れたタングステン製バスケットに通電して蒸着速度0.1nm/秒で銀を蒸着させると同時に、マグネシウムリボン入りのポートに通電して蒸着速度1.4nm/秒でマグネシウムを蒸着させた。この二元同時蒸着により、DPVPQ層上に膜厚150nmのマグネシウム-銀層（陰極に相当）を製膜した。以上のようにして、目的の有機EL素子(ITO/CuPc/TPD/DPVPQ/Mg:Ag)が得られた。得られた有機EL素子に、電圧10Vを印加した結果、13mA/cm²の電流が流れ、50cd/m²のGreenish Blueの発光が観測された。このとき、発光効率は0.12ルーメン/Wであった。また、蛍光スペクトルの測定結果より、発光のピーク波長は485nmであり、DPVPQからの発光と確認された。この素子を50cd/m²の輝度で発光させ、輝度計(CS-100, ミノルタカメラ(株)製)を用いて観測したところ、観察領域が素子作成直後においても、1日経過後においても均一発光(直径10μm以上の無発光領域もしくは発光むらは無かった。)であった。

40 【0086】

【発明の効果】以上の如く、本発明の有機EL素子は、複素環スチリル化合物を用いることによって、金属との付着性および薄膜性に優れるとともに、発光の均一性にも優れた性質を有することを可能とした。したがって、本発明の有機EL素子は、有機EL素子など各種素子として有効な利用が期待される。